

## **Теория клеточных автоматов как метод описания процесса кристаллизации урана**

Сериков Д.А., Очоа Бикэ А.О.  
dmitrii\_serikov@mail.ru

**Научный руководитель: доктор технических наук Горюнов Алексей Германович, кафедра ЭАФУ ФТИ ТПУ**

*В данной работе рассматривается возможность применения теории клеточных автоматов к моделированию процесса кристаллизационного аффинажа нитрата уранила из азотнокислого раствора.*

*Представлено математическое описание модели, законы эволюции системы, а также текущие результаты работы модели.*

**Введение.** В данной работе описан первый этап синтеза модели процесса кристаллизационного аффинажа нитрата уранила из азотнокислого раствора с применением теории клеточных автоматов. Данный этап представляет собой разработку модели процесса кристаллизации в плоской гексагональной системе без учета ряда физических законов, а также части термодинамических свойств урана и его соединений, не оказывающих существенное влияние на достоверность протекания процесса. В данной работе рассматривается процесс роста кристалла в пересыщенном растворе без учета зародышеобразования.

Таким образом, модель представляет собой симулятор роста кристаллов в гексагональной плоской решетке с заранее определенными центрами кристаллизации, значениями концентраций азотной кислоты и урана, а также температурой раствора.

Цель работы – изучение и накопление информации о кристаллизационном аффинаже урана и его соединений для дальнейшего использования в методах выделения и очистки целевых продуктов при переработке облученного ядерного топлива.

Актуальность рассматриваемой проблемы определяется ориентацией современной российской атомной энергетики на технологию замкнутого ядерного цикла, которая подразумевает повторное использование отработанного ядерного топлива.

Принципиальной особенностью технологии переработки ОЯТ является его высокая радиоактивность, что требует организации биологической защиты для установок и высокого уровня автоматизации и контроля над процессами. Большинство технологических схем предполагает использование водных процессов (жидкостная экстракция, ионообменная сорбционная технология), в которых реагенты в значительной мере подвержены радиационному воздействию, что снижает возможность их многократного использования [1].

Сепарация кристаллизацией не может дать таких результатов, как сепарация экстракцией, поэтому кристаллизация сих пор не применялась в коммерческой переработке ОЯТ. Однако, несмотря на данный недостаток этого метода, он имеет несколько преимуществ по сравнению с традиционно используемыми методами.

Кристаллизационный аффинаж из растворов не требует участия сторонних реагентов. Срок работы кристаллизатора определяется только радиационной

стойкостью материалов. Поскольку процесс кристаллизации не требует использования горючих органических растворителей, использование данного метода значительно безопаснее. Помимо этого, некоторые процессы, связанные с растворителем, как, например, его промывка, могут быть исключены, что ведет к упрощению технологии переработки ОЯТ, а также уменьшению объема жидких радиоактивных материалов [2].

**Применение клеточных автоматов к процессу кристаллизации.** Клеточные автоматы являются дискретными динамическими системами, поведение которых полностью определяется в терминах локальных зависимостей. Клеточный автомат можно представить как некоторое пространство, разбитое равномерной сеткой на отдельные ячейки. При этом каждая ячейка или клетка содержит определенную информацию о своем состоянии. Время дискретно и задается числом итераций работы автомата, а законы мира выражаются единственным набором правил (законами эволюции), по которым новое состояние каждой клетки на каждом шаге определяется состоянием ее соседей. Законы системы являются локальными и повсюду одинаковыми [3].

Удобство присваивания некоторому выделенному объему жидкости клетки в решетке автомата, фиксирование фазовых состояний соответствующими значениями элементов массивов, а также наличие опыта применения клеточных автоматов для моделирования гидродинамических течений[4] указывают на возможность применения клеточных автоматов к процессу кристаллизации.

Основные задачи при моделировании процесса роста кристаллов:

- 1) определение законов эволюции системы;
- 2) описание процессов, происходящих при кристаллизации, таких как выделение тепла при затвердевании ячейки и снижение концентрации вещества в растворе в её окрестности;
- 3) принятие допущений, упрощающих реализацию модели, но не влияющих на суть данного исследования.

В данной модели используется гексагональная решетка (сеть), каждая клетка которой определяет элементарную ячейку пространства – раствора азотнокислого нитрата уранила. Разбиение пространства на ячейки гексагональной решетки обусловлено её большей изотропностью в сравнении с треугольной и прямоугольной решеткой (Рисунок 1.а). Для реализации и вывода на дисплей ЭВМ решетка была приведена к виду, изображенному на рисунке 1.б.

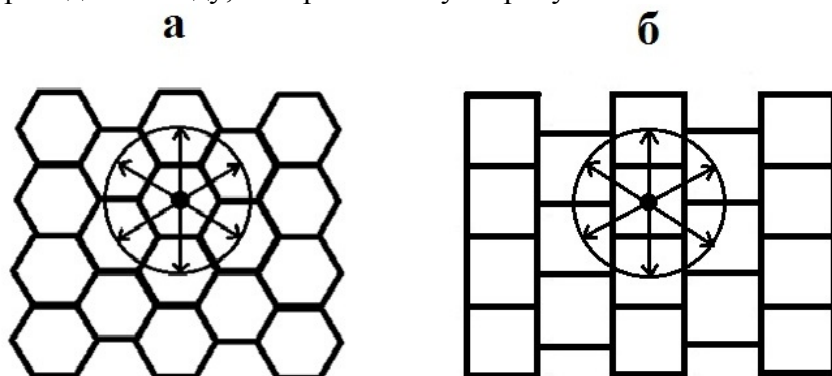


Рисунок 1. а – гексагональная решетка, б – преобразованная гексагональная решетка

Клеткам решетки приписывается двухфазное поле  $\Phi_{ij}^{(n)} = \{0; 1\}$ , где 0 соответствует жидкому состоянию, 1 – твердому, индекс  $n$  определяет номер итерации (время), а индексы  $i, j$  – координаты клетки на плоскости. Каждой клетке ставится в соответствие значение концентрации  $C_{ij}^{(n)}$  и температуры  $T_{ij}^{(n)}$ . Перед первой итерацией задаются начальные значения этих характеристик. Процесс роста кристалла происходит согласно определенным правилам и условиям эволюции.

Условия перехода клетки из жидкого состояния в твердое (условия фазового перехода):

- Процесс может происходить только в прямом направлении, то есть возможен переход только из жидкой фазы ( $\Phi_{ij} = 0$ ) в твердую фазу ( $\Phi_{ij} = 1$ ). Обратный переход здесь запрещен.
- Закристаллизоваться, то есть перейти в твердую фазу, клетка может только при условии, что хотя бы одна из ее соседей уже находится в твердом состоянии.
- Клетка перейдет из жидкого состояния в твердое, если выполняется следующее условие

$$\Delta_{ij}^{(n)} > \Delta^* - \lambda \cdot \left[ \sum_{k,l \in O(i,j)} \Phi_{kl}^{(n)} - 3 \right], \quad (1)$$

где  $\Delta_{ij}^{(n)}$  – пересыщение в  $\{i, j\}$ -ой клетке;

$\Delta^*$  – предельное пересыщение;

$\Phi_{kl}^{(n)}$  – фаза  $\{k, l\}$ -ой клетки ближайшего окружения  $\{i, j\}$ -ой клетки;

$\lambda$  – параметр, являющийся связным нормирующим коэффициентом в слагаемом, характеризующем влияние локальной кривизны межфазной поверхности на условие фазового перехода.

Фазовый переход  $\{i, j\}$ -ой клетки из жидкого состояния в твердое сопровождается увеличением температуры в ней самой на некоторую величину  $dT$  и уменьшением концентрации вещества в жидких клетках ближайшего окружения, то есть

$$T_{ij}^{(n+1)} = T_{ij}^{(n)} + dT, \quad (2)$$

$$C_{kl}^{(n+1)} = C_{kl}^{(n)} - q \cdot \Delta_{kl}^{(n)}, \quad (3)$$

где  $q$  – коэффициент, аналогичный кинетической константе скорости роста кристалла.

Кроме этого, на каждом шаге по времени происходит теплообмен между жидкими клетками и диффузия вещества по следующим законам

$$C_{ij}^{(n+1)} \rightarrow C_{ij}^{(n)} + \frac{D}{m} \cdot \left( \langle C_{kl}^{(n)} \rangle - C_{ij}^{(n)} \right), \quad (4)$$

$$T_{ij}^{(n+1)} \rightarrow T_{ij}^{(n)} + \frac{a}{p} \cdot \left( \langle T_{kl}^{(n)} \rangle - T_{ij}^{(n)} \right). \quad (5)$$

Здесь

$$\langle C_{kl}^{(n)} \rangle = \frac{1}{n_{\text{ж}}} \cdot \sum_{k,l \in O(i,j)} C_{kl}^{(n)}, \quad (6)$$

$$\langle T_{kl}^{(n)} \rangle = \frac{1}{8} \cdot \sum_{k,l \in O(i,j)} T_{kl}^{(n)}, \quad (7)$$

где  $n_{ж}$  – число жидких клеток из ближайшего окружения  $\{i,j\}$ -ой клетки ( $n_{ж} \leq 8$ ),  $\langle C_{kl}^{(n)} \rangle$  и  $\langle T_{kl}^{(n)} \rangle$  – соответственно средняя концентрация в жидких клетках и средняя температура в жидких и твердых клетках ближайшего окружения  $\{i,j\}$ -ой клетки,  $D$ ,  $a$ ,  $m$ ,  $p$  – параметры, характеризующиеся коэффициентом диффузии, теплопроводностью, а также дискретизацией пространства и времени [6].

В данной работе была использована следующая функция  $C_U = f(C_H, T_{abs})$ , определяющая соотношение концентраций урана и азотной кислоты в растворе в зависимости от температуры [2]:

$$C_U = 10^\alpha, \quad (8)$$

где

$$\alpha = 5,504 - 1,411C_H + 0,0263C_H^2 - 0,913 \cdot 10^{-2}T_{abs} + 0,088 \cdot 10^{-4}T_{abs}^2 + 3,586 \cdot 10^{-3}C_H T_{abs}.$$

Здесь  $T_{abs}$  – абсолютная температура раствора,  $C_H$  и  $C_U$  – массовые концентрации азотной кислоты (моль/л) и урана (г/л).

Функциональная зависимость (8) была выведена из диаграмм растворимости, полученных опытным путем (рисунок 2).

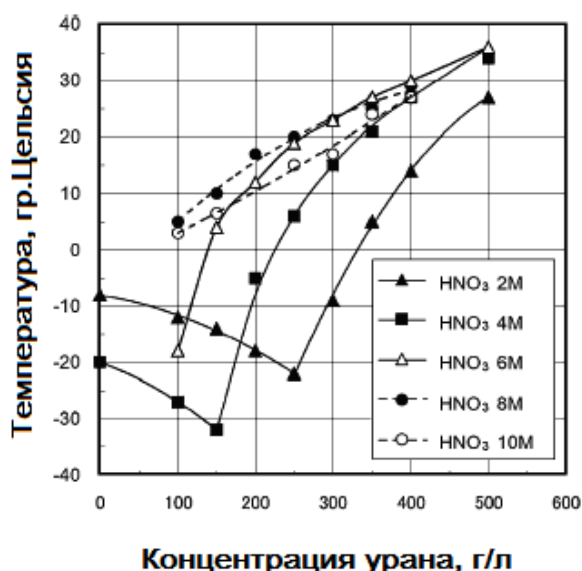


Рисунок 2. Диаграммы растворимости урана

На рисунках 3,4 и 5 представлены результаты работы модели для  $n=20$  и  $n=30$  итераций.

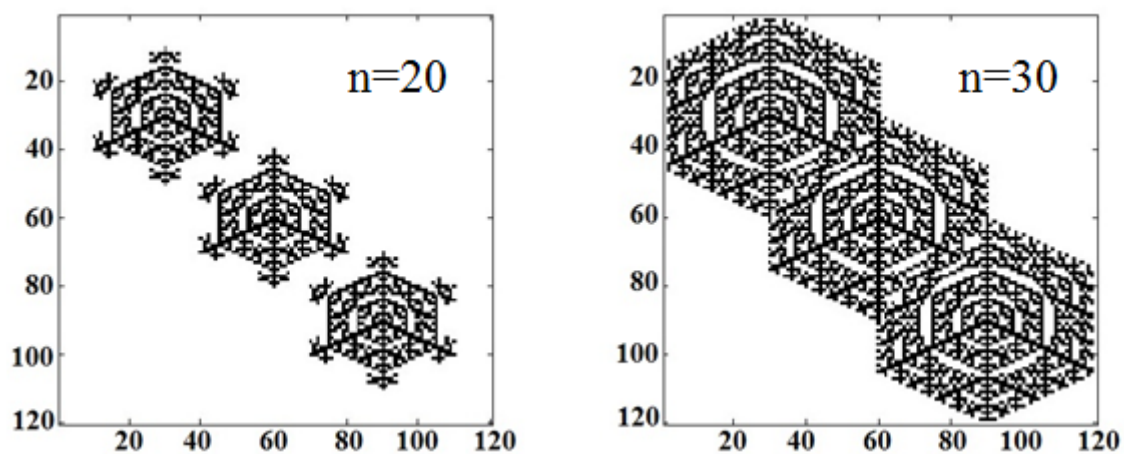


Рисунок 3. Форма образовавшегося кристалла

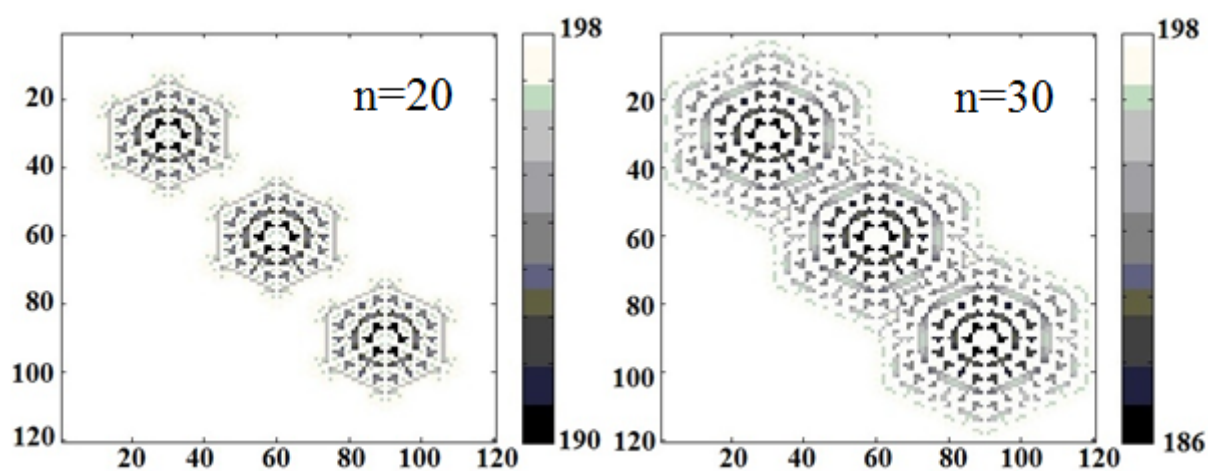


Рисунок 4. Поле концентрации урана

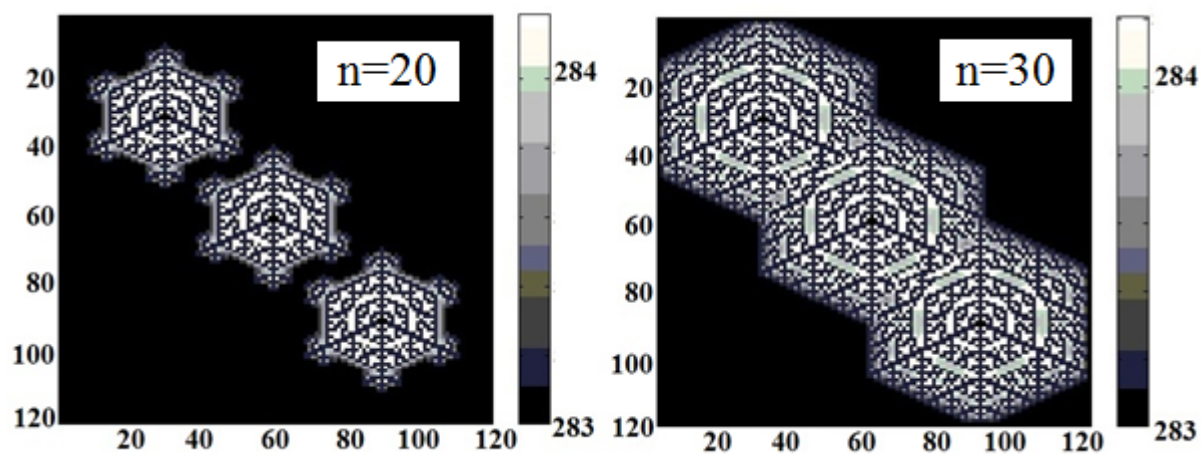


Рисунок 5. Распределение температуры

В данном случае использовались 3 центра кристаллизации. Начальная концентрация азотной кислоты составляла 6 моль/л, урана – 198 г/л, начальная температура – 283 К.

**Выводы:** была получена математическая модель процесса кристаллизационного аффинажа гексагидрата нитрата уранила в ее первом приближении. Данная модель представляет собой симуляцию роста кристалла в двухмерном пространстве при заданных начальных условиях, а именно: концентрации урана, концентрации азотной кислоты и температуры раствора. Результатом работы данной модели является форма полученного кристалла, а также конечное распределение температуры и концентрации урана в растворе. Модель адекватно работает как для одного центра кристаллизации, так и для нескольких.

В дальнейшем запланировано:

- 1) Определить все термодинамические константы, свойственные соединениям урана;
- 2) Уточнить процессы, происходящие при кристаллизации, и добавить их в модель;
- 3) Реализовать условие теплообмена между клетками с учетом фазового состояния клеток-соседей;
- 4) Реализовать трехмерную модель процесса кристаллизации.

#### **Список литературы:**

1. Кулагин, В.А. Переработка отработавшего ядерного топлива и обращение с радиоактивными отходами / В.А. Кулагин, Т.А. Кулагина, А.И. Матюшенко // Journal of Siberian Federal University.
2. Takahiro Chikazawa. Batch Crystallization of Uranyl Nitrate/ Takahiro Chikazawa, Toshiaki Kikuchi, Atsuhiko Shibata, Tomozo Koyama, Shunji Homma // Nuclear science and Technology, vol. 45, No. 6, p. 582–587, 2008.
3. Тоффоли Т. Машины клеточных автоматов / Т. Тоффоли, М. Марголус: Мир, 1991.
4. Наумов, Лев. Клеточные автоматы - реализация и эксперименты [Электронный ресурс] / Л. Наумов, А. Шалыто : <http://www.osp.ru/pcworld/2003/08/166226/>
5. Беркович, С.Я. Клеточные автоматы как модель реальности / С.Я. Беркович: Издательство МГУ, 1993.
6. Абашева, Э.Р. Исследование и моделирование процессов кристаллизации с применением клеточных автоматов / Э.Р. Абашева: РХТУ им. Д. И. Менделеева. Москва, 2007.

#### **Расчетно-экспериментальные исследования реактивностных параметров реактора ИРТ-Т**

Сливин А.А., Чертков Ю.Б., Аникин М.Н.  
slivin-a@mail.ru

*Научный руководитель: доцент, кандидат физико-математических наук, Чертков Ю.Б., НИ ТПУ, кафедра ФЭУ*

Реактор ИРТ-Т (исследовательский реактор типовой) – это водо-водяной реактор бассейнового типа на тепловых нейтронах с использованием в качестве замедлителя,